

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 8 月 9 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25246020

研究課題名(和文) 縦型ショットキースピントランジスタの創製

研究課題名(英文) Development of vertical-type spin MOSFET with Schottky source and drain

研究代表者

浜屋 宏平 (Hamaya, Kohei)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：90401281

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、半導体(ゲルマニウム; Ge)を用いた『縦型ショットキースピンMOSFET』の可能性を独自に探索した。主な研究成果として、全エピタキシャル強磁性金属/Ge/強磁性金属縦型構造の実証、p-Ge/強磁性金属ショットキートネル接合を介したスピン注入・検出の実証、Geチャネル縦型スピンプラップ構造におけるスピン依存伝導現象の観測、の3つの成果があげられる。これらの成果は全て、代表者が独自に開発してきたオンリーワンの技術が鍵となっており、世界に類を見ない研究成果であると言える。今後、縦型Ge構造におけるスピン信号の増大することで、応用への道を開拓する必要がある。

研究成果の概要(英文)：In this project, we have studied an innovation of vertical-type Ge-based spin MOSFET with Schottky-tunnel contacts.

We have obtained three main research results. First, using MBE technique, we have fabricated all-epitaxial ferromagnet/Ge/ferromagnet vertical stacked structures for the first time. Next, spin injection and detection through p-Ge/ferromagnet vertical structures can be demonstrated. This is the first observation of spin transport in p-Ge. Finally, using ferromagnet/Ge/ferromagnet vertical stacked structures, we have observed spin-dependent transport depending on magnetization configuration between ferromagnets. This can be observed up to room temperature. Since the spin signals at room temperature is still small, we should enhance them by making some efforts such as the suppression of spin relaxation in Ge and the use of highly spin-polarized spin injector and detector.

研究分野：応用物性

キーワード：スピントロニクス ゲルマニウム 結晶成長 スピン注入

### 1. 研究開始当初の背景

半導体素子に電子の『スピン機能』を付加することで新機能デバイスを創製する『スピントロニクス』が注目を集めており、特に、菅原と田中によって提案されたスピン MOSFET [Appl. Phys. Lett. **84**, 2307 (2004)]は、不揮発メモリ搭載型の夢の超低消費電力半導体素子として期待が大きい。しかし、Si および Ge へのスピン注入によって得られる「室温スピン蓄積信号」は非常に微弱(数  $\mu\text{V}$ )であるため[ex. Appl. Phys. Lett. **99**, 132511 (2011)], 更なるスピン注入効率の改善と半導体チャンネル中のスピン緩和抑制の両立が求められている。

代表者は、従来の横型トランジスタ構造に拘らない『縦型ショットキースピン MOSFET』の可能性を独自に探索している(図 1)。ソース・ドレイン電極は不純物ドーピング型(p/n 接合)ではなく、ショットキートンネル伝導によってスピン注入・検出を実現するための強磁性金属/半導体接合であり、その中間層はスピン伝導チャンネルとして機能する半導体(ゲルマニウム; Ge)である。ボトムアップ技術を利用するために極短チャンネル化が可能であり、トンネル電子(正孔)注入技術と融合することで「バリステック伝導」を利用することも不可能ではない。この構造が実現すれば、後述する高効率スピン注入とチャンネル中のスピン緩和の抑制が両立し、室温で十分な信号強度を得ることができる。つまり、近年、MRAM に応用されようとしている強磁性トンネル接合並みのスピン信号を有する不揮発 3 端子半導体スイッチへの応用への道が拓かれる。

### 2. 研究の目的

代表者が開発中の強磁性金属上への半導体 Ge 薄膜成長技術 [Cryst. Growth & Des. **12**, 4703 (2012)]を応用し、デバイス応用上必須であるシリコン(Si)基板に、『強磁性金属/Ge/強磁性金属』構造からなる縦型 Ge チャンネル構造を創製し、Ge 層を介したスピン依存伝導現象を観測することで、縦型半導体スピン素子への応用の道を開拓する。また、縦型 Ge スピン素子の創製に関係する強磁性合金薄膜の低温成長技術やゲート構造の低温作製技術を開発する。

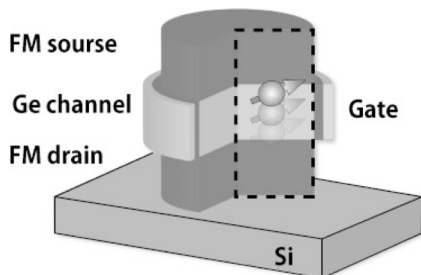


図 1. 代表者が目指す Ge チャンネル縦型スピン MOSFET の模式図。

### 3. 研究の方法

Ge チャンネルを有する縦型スピン MOSFET を実現するために、我々が開発した終端原子同時蒸着技術を駆使して、(1) Si 基板上に形成した強磁性金属( $\text{Fe}_3\text{Si}$  など)上のエピタキシャル Ge スピン伝導チャンネルを形成し、Ge/ $\text{Fe}_3\text{Si}$  薄膜界面のショットキートンネル伝導を実証する。次に、(2) Ge チャンネル層上への強磁性金属( $\text{Fe}_3\text{Si}$  など)からのスピン注入の検証、最終的に(3)『強磁性金属/Ge 薄膜/強磁性金属』縦型素子構造における世界初の室温スピン伝導(読み出し動作)を実現する。

### 4. 研究成果

#### (1) Si 基板上への縦型 Ge 素子構造の実現とショットキートンネル伝導の観測

縦型スピン MOSFET の実証に向けて、まず、強磁性金属/Ge/強磁性金属からなる縦型構造を実証する。強磁性電極から Ge へのスピン注入効率を極大化するために、高いスピン注入効率が期待される『ハーフメタル』と呼ばれる材料群の形成手法を検討した。代表者は既に、ハーフメタル特性が期待される材料群である「ホイスラー合金」と称される材料群や CoFe 合金などの bcc 合金系を、バルク Ge 基板上に  $200^\circ\text{C}$ 前後の低温で規則合金化する独自の技術[ex. Phys. Rev. Lett. **102**, 137204 (2009); Phys. Rev. B **83**, 144411 (2011).など]を有しており、この技術に応用した。

これまで通り、 $\text{Fe}_3\text{Si}$  上に Ge 薄膜を終端原子同時蒸着法で成長し、その直上に  $\text{Fe}_3\text{Si}$  や CoFe 合金など形成する技術を探索した。図 2 には、実際に Si 基板上に成長した  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Ge}/\text{Fe}_3\text{Si}$  縦型構造の断面透過型電子顕微鏡 (TEM) 写真を示す。全ての層のエピタキシャル成長に成功していることが明瞭に示されており、Ge チャンネル縦型スピン MOSFET を目指す我々にとって、最低限の

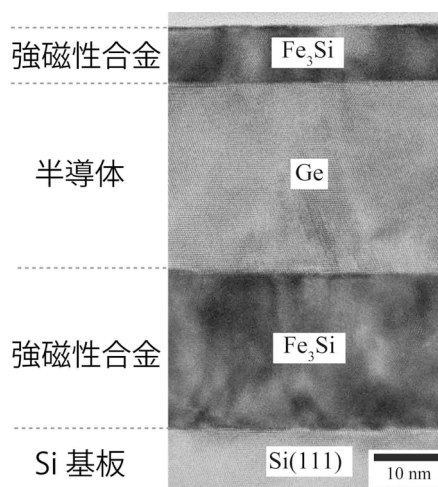


図 2. 実証した強磁性/Ge/強磁性縦型構造の例( $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Ge}/\text{Fe}_3\text{Si}$  の断面 TEM 写真)。

基本構造を実証したと言える。この縦型構造をスピンドバイスへ応用するためには、薄膜面内方向に磁化状態を制御する必要があるが、本構造の磁化測定において、上部強磁性層と下部強磁性層の磁化配置が『平行⇔反平行』と切り替わることを確認した。つまり、スピン依存伝導現象を観測するための最低条件は得られていることが示唆された。

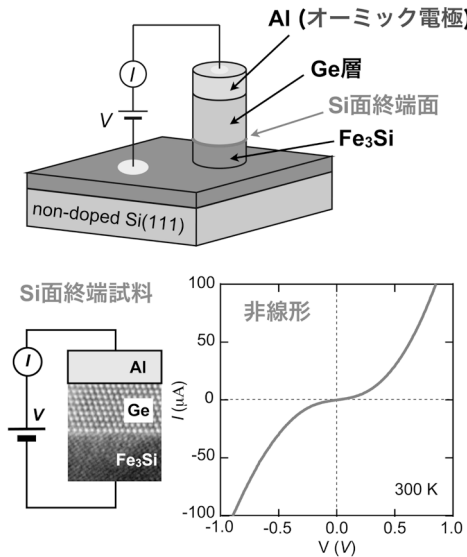


図 3. Ge/Fe<sub>3</sub>Si 界面の電気伝導検証素子構造とその  $I-V$  特性(300 K).

次に、Ge へのスピン注入効率を向上するために重要となる Ge/強磁性電極ヘテロ界面の電気伝導特性を調査した。今回作製した Ge 層は不純物ドーピングを行っていないが、Ge は従来から欠陥誘起のキャリア(正孔)を生成していることが知られている。熱起電力を測定した結果、キャリアが正孔であること(p 形 Ge; p-Ge)を確認した。図 3 には、実際に作製した素子の模式図(上)と  $I-V$  特性の測定結果(300 K)を示す。p-Ge 層に金属を接合すると、強いフェルミ準位ピンニング効果の影響でオーミック接合になることが知られているため、片側の電極を非磁性 Al とし、Ge/Fe<sub>3</sub>Si 界面の接合抵抗を測定する工夫を施した。

図 3 の測定結果から、室温でも  $I-V$  特性は非線形を示しており、Ge/Fe<sub>3</sub>Si 界面を介した電気伝導特性はトンネル伝導であることが示唆された。これは、Ge 基板を用いて Fe<sub>3</sub>Si/Ge 接合界面の電気伝導を測定した結果得られたフェルミ準位ピンニング効果の抑制現象[Phys. Rev. B **84**, 205301 (2011).]を反映していると考えられ、約 0.16~0.20 eV のショットキー障壁が形成されていると予想された。これにより、トンネル伝導を介したスピン注入・検出の可能性が示された。

## (2) 横型素子を応用した p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 構造におけるスピン注入の実証

Fe<sub>3</sub>Si 上に形成されている Ge 層は p 形であることが判明したため、スピン拡散長が極めて短いチャネル層であることが予想される。同時に、信頼性の高いスピン注入・検出を実証するために、スピン伝導を証明する検出手法を確立する必要がある。そこで本研究では、図 4 に示すような横型スピバルブ構造に p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si を電極部に組み込んだ Fe<sub>3</sub>Si /Cu/p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 素子構造を提案し、「純スピン流伝導」の検出を試みた。この手法は、代表者のグループで初めて検証された手法である。図 4 上に示すように、p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si をスピン注入電極とする Cu への純スピン流注入手法を用いて、p-Ge 層を介した純スピン流伝導が実現すれば、逆側の Fe<sub>3</sub>Si 電極で非局所電圧(スピン蓄積電圧)を検出することが可能となる。

図 5 の挿入図には、非局所抵抗(電圧/電流)の磁場依存性を示している。明瞭なヒステリシス曲線が観測されており、0.1mΩ 程度の非局所抵抗の変化量(スピン信号)が得られた。これは p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 構造を用いて p-Ge 層を介して純スピン流が検出されたことを示している。このスピン信号は、温度の上昇に伴って減衰し、150 K 付近では消失している。スピン信号を温度に対してプロットしたものを図 5 の左軸に示す。ここで、比較のために p-Ge 層を含まない Fe<sub>3</sub>Si /Cu/Fe<sub>3</sub>Si 素子構造を同時に測定した結果を右軸に示した。p-Ge 層を含まない素子では、室温以上でもスピン信号を観測することができることを確認した。つまり、p-Ge 層を含む素子における急激な温度依存性は、p-Ge 中のスピン

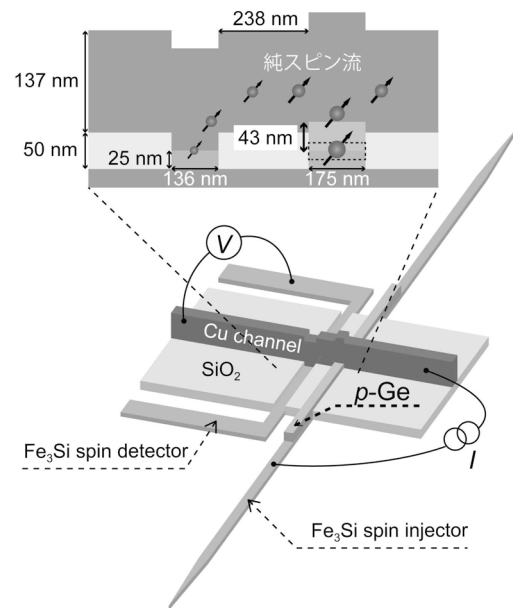


図 4. Fe<sub>3</sub>Si /Cu/p-Ge/Fe<sub>3</sub>Si 横型スピバルブ構造の模式図。

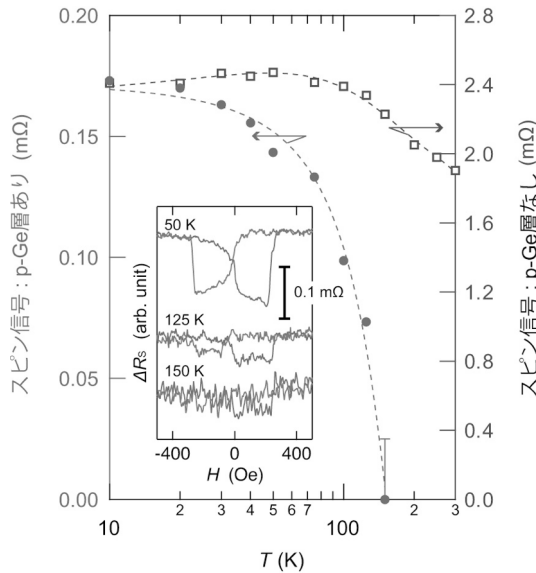


図 5.  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Cu}/\text{p-Ge}/\text{Fe}_3\text{Si}$  横型スピバルブ素子におけるスピ信号の温度依存性(左軸). 右軸は  $\text{Fe}_3\text{Si}/\text{Cu}/\text{Fe}_3\text{Si}$  素子の結果.

緩和の影響であることが示唆される.

スピ信号の大きさは、一次元スピ拡散モデルを用いて表記することができるため、p-Ge 層のスピ拡散長やスピ緩和時間に関する情報を得ることも可能である. 詳細は割愛するが、今回の実験では、スピ拡散長が 10 K で約 50 nm, スピ緩和時間が数 10 ピコ秒であることが明らかとなった.

### (3) 強磁性/p-Ge/強磁性縦型構造におけるスピ依存伝導の観測

中間 p-Ge 層のスピ拡散長が低温で 50 nm 程度しかないことが判明したため、強磁性/p-Ge/強磁性構造の中間 Ge 層をできるだけ薄膜化することとした. しかし、Ge 層を薄膜化すると Ge 層表面の平坦性(1nm 以下)を得ることが難しく、上部強磁性層のエピタキシャル成長に支障が出ることが判った. そのため、中間 Ge 層を低温(200°C以下)で形成する新しい手法を開発し、20 nm 程度の Ge 層を比較的平坦に成長することに成功した. その直上に、今回は CoFe 合金層をエピタキシャル成長し、電子線リソグラフィや Ar イオンミリング等を用いてピラー型の縦型スピバルブ素子へと微細加工した.

縦型伝導素子の電気抵抗の温度依存性を測定したところ、低温側で増加する傾向を示し、中間層に非縮退系半導体品質の Ge 層が形成されていることが確認された. 低温(30 K 以下)における  $I-V$  特性はトンネル伝導を示唆する非線形曲線を示した. 図 6 には、30 K で測定した電圧変化の磁場依存性を示す. 上下の強磁性電極の磁化配置(平

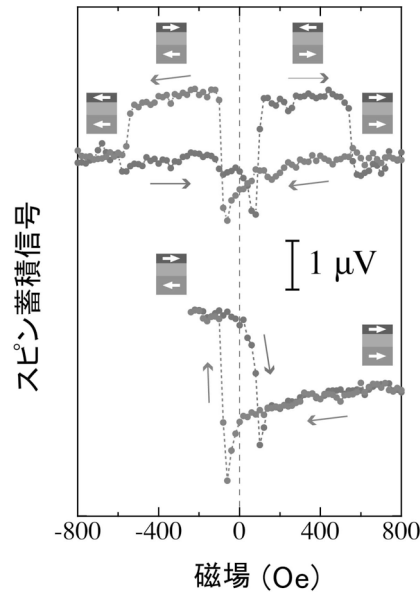


図 6.  $\text{CoFe}/\text{p-Ge}/\text{Fe}_3\text{Si}$  縦型スピバルブ素子におけるスピ蓄積信号(上)とそのマイナーループ(下).

行・反平行)に対応した明瞭な矩形のヒステリシス信号(上)が観測されている. 明瞭なマイナーループ(下)も観測され、反平行配置が安定に形成されていることが確認された. この結果は、 $\text{CoFe}/\text{Ge}/\text{Fe}_3\text{Si}$  縦型構造におけるスピ伝導(スピ蓄積)の観測に成功したことを意味しており、p-Ge 層を介したスピ依存伝導を実証したものである. この信号は、室温でも観測されており、Ge チャネル縦型スピ MOSFET の実現するための要素技術は着実に開発されてきている. しかし、不揮発メモリ動作を搭載した MOSFET として実用化するためには、磁気抵抗比(MR 比)がまだまだ小さく、今後、如何にして MR 比を増大させていくかが重要な課題となる.

本研究においては、これら以外の成果として、高性能スピ注入源としてのハーフメタルホイスラー合金系を用いた純スピ流生成・検出、ホイスラー合金系を縦型素子と融合するための結晶成長技術、MOSFET 用の低温ゲート構造作製技術などの成果を上げ、それぞれ論文文化に成功している.

一方、縦型構造を利用して Ge チャネル素子の高性能動作を実証するためには、Ge 結晶の室温におけるキャリア濃度を低減させるための更なる高品質化(高純度化)が重要であるという課題が明確となっている. 現有の MBE 装置では、強磁性元素と Ge を同じチャンバー内で作製することしかできないために不純物の混入を避けられず、課題解決のためには更なる高額(5 千万円以上)な設備投資を行わなければならないという現状がある. これを実証する前に、これまでの成果を応用可能である「純スピ流ゲート構造」へ展開可能で

あると着想し、最終年度前年度の応募を行った結果、それが認められ、基盤研究(A)(No. 16H02333)として新たに研究を進めている。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 30 件)

1. Y. Fujita, M. Yamada, S. Yamada, T. Kanashima, K. Sawano, and K. Hamaya, “Temperature-independent spin relaxation in heavily doped n-type germanium”, *Physical Review B*, 査読有, vol. 94, 2016, pp. 115302-1-5. [DOI:10.1103/PhysRevB.94.245302]
2. M. Ikawa, M. Kawano, S. Sakai, S. Yamada, T. Kanashima, K. Hamaya, “Influence of the Ge diffusion on the magnetic and structural properties in Fe<sub>3</sub>Si and CoFe epilayers grown on Ge”, *Journal of Crystal Growth*, 査読有, vol. 468, 676-679 (2017). [DOI:10.1016/j.jcrysgro.2016.09.070]
3. S. Yamada, S. Honda, J. Hirayama, M. Kawano, K. Santo, K. Tanikawa, T. Kanashima, H. Itoh, and K. Hamaya, “Magnetic properties and interfacial characteristics of all-epitaxial Heusler-compound stacking structures”, *Physical Review B*, 査読有, vol. 94, 2016, pp. 094435-1-7. [DOI:10.1103/PhysRevB.94.094435]
4. Y. Fujita, M. Yamada, Y. Nagatomi, K. Yamamoto, S. Yamada, K. Sawano, T. Kanashima, H. Nakashima, and K. Hamaya, “A low-temperature fabricated gate-stack structure for Ge-based MOSFET with ferromagnetic epitaxial Heusler-alloy/Ge electrodes”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有, vol. 55, 2016, 063001-1-4. [DOI:10.7567/JJAP.55.063001]
5. M. Kawano, K. Santo, M. Ikawa, S. Yamada, T. Kanashima, and K. Hamaya, “Spin transport in *p*-Ge through a vertically stacked Ge/Fe<sub>3</sub>Si junction”, *Applied Physics Letters*, 査読有, vol. 109, 2016, 022406-1-4. [DOI:10.1063/1.4958894]
6. K. Hamaya, M. Kawano, Y. Fujita, S. Oki and S. Yamada, “Finely Controlled Approaches to Formation of Heusler-Alloy/Semiconductor Heterostructures for Spintronics”, *Materials Transactions*, 査読有, vol. 57(6), 2016, 760-766. [DOI:10.2320/matertrans.ME201503]
7. M. Kawano, M. Ikawa, K. Arima, S. Yamada, T. Kanashima, and K. Hamaya, “All-epitaxial Co<sub>2</sub>FeSi/Ge/Co<sub>2</sub>FeSi trilayers fabricated by Sn-induced low-temperature epitaxy”, *Journal of Applied Physics*, 査読有, vol. 119, 2016, 045302-1-6. [DOI:10.1063/1.4940702]
8. T. Kanashima, H. Nohira, M. Zenitaka, Y. Kajihara, S. Yamada, and K. Hamaya, “Effect of atomic-arrangement matching on La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ge heterostructures for epitaxial high-*k*-gate-stacks”, *Journal of Applied Physics*, 査読有, vol. 118, 2015, 225302-1-5. [DOI:10.1063/1.4937147]
9. K. Kasahara, Y. Nagatomi, K. Yamamoto, H. Higashi, M. Nakano, S. Yamada, D. Wang, H. Nakashima, and K. Hamaya, “Electrical properties of pseudo-single-crystalline germanium thin-film-transistors fabricated on glass substrates”, *Applied Physics Letters*, 査読有, vol. 107, 2015, 022406-1-4. [DOI:10.1063/1.4932376]
10. M. Ishikawa, H. Sugiyama, T. Inokuchi, K. Hamaya, and Y. Saito, “Spin transport and accumulation in *n*<sup>+</sup>-Si using Heusler compound Co<sub>2</sub>FeSi/MgO tunnel contacts”, *Applied Physics Letters*, 査読有, vol. 107, 2015, 092402-1-5. [DOI:10.1063/1.4929888]
11. Y. Saito, M. Ishikawa, H. Sugiyama, T. Inokuchi, K. Hamaya, and N. Tezuka, “Correlation between amplitude of spin accumulation signals investigated by Hanle effect measurement and effective junction barrier height in CoFe/MgO/*n*<sup>+</sup>-Si junctions”, *Journal of Applied Physics*, 査読有, vol. 111, 2015, 17C707-1-4. [DOI:10.1063/1.4907242]
12. J. Hirayama, K. Tanikawa, M. Kawano, S. Yamada, M. Miyao, and K. Hamaya, “An All-Epitaxial Fe<sub>3</sub>Si/FeSi/Co<sub>2</sub>FeSi Trilayer Grown by Room-Temperature Molecular Beam Epitaxy”, *IEEE Transactions on Magnetics*, 査読有, Vol. 50(11), 1-3. [DOI: 0.1109/TMAG.2014.2321426]
13. S. Yamada, K. Tanikawa, S. Oki, M. Kawano, M. Miyao, and K. Hamaya, “Improvement of magnetic and structural stabilities in high-quality Co<sub>2</sub>FeSi<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>/Si heterointerfaces”, *Applied Physics Letters*, 査読有, vol. 105, 2014, 071601-1-4. [DOI:10.1063/1.4893608]
14. K. Kasahara, S. Yamada, T. Sakurai, K.

- Sawano, H. Nohira, M. Miyao, and K. Hamaya, “Reliable reduction of Fermi-level pinning at atomically matched metal/Ge interfaces by sulfur treatment”, Applied Physics Letters, 査読有, vol. 104, 2014, 172109-1-4.  
[DOI:10.1063/1.4875016]
15. K. Kasahara, Y. Fujita, S. Yamada, K. Sawano, M. Miyao and K. Hamaya, “Greatly enhanced generation efficiency of pure spin currents in Ge using Heusler compound Co<sub>2</sub>FeSi electrodes”, Applied Physics Express, 査読有, vol. 7, 2014, 033002-1-4.  
[DOI:10.7567/APEX.55.033002]
16. K. Tanikawa, S. Oki, S. Yamada, M. Kawano, M. Miyao, and K. Hamaya, “High-quality Co<sub>2</sub>FeSi<sub>0.5</sub>Al<sub>0.5</sub>/Si heterostructures for spin injection in silicon spintronic devices”, Thin Solid Films, 査読有, vol. 557, 2014, 390-393.  
[DOI:10.1016/j.tsf.2013.08.128]
17. Y. Fujita, S. Yamada, Y. Maeda, M. Miyao, and K. Hamaya, “A magnetic tunnel junction with an L<sub>21</sub>-ordered Co<sub>2</sub>FeSi electrode formed by all room-temperature fabrication processes” Thin Solid Films, 査読有, vol. 557, 2014, 386-389.  
[DOI:10.1016/j.tsf.2013.08.130]
18. K. Sawano, Y. Hoshi, S. Endo, T. Nagashima, K. Arimoto, J. Yamanaka, K. Nakagawa, S. Yamada, K. Hamaya, M. Miyao, and Y. Shiraki, “Formation of Ge(111) on Insulator by Ge epitaxy on Si(111) and layer transfer”, Thin Solid Films, 査読有, vol. 557, 2014, 76-79.  
[DOI:10.1016/j.tsf.2013.10.074]
19. M. Ishikawa, H. Sugiyama, T. Inokuchi, T. Tanamoto, K. Hamaya, N. Tezuka, and Y. Saito, “Maximum magnitude in bias-dependent spin accumulation signals of CoFe/MgO/Si on insulator devices” Journal of Applied Physics, 査読有, vol. 114, 2013, 243904-1-6.  
[DOI:10.1063/1.4856955]
20. S. Oki, S. Yamada, K. Tanikawa, K. Yamasaki, M. Miyao, and K. Hamaya, “Lateral spin valves with two-different Heusler-alloy electrodes on the same platform”, Applied Physics Letters, 査読有, vol.103, 2013, 212402-1-4.  
[DOI:10.1063/1.4832480]

他 10 件

〔学会発表〕（計 67 件）

1. K. Hamaya, “Ge spintronics developed by semiconductor technologies”, The 40th Annual Conference on Magnetism in Japan, 2016 年 9 月 6 日, 金沢大学 角間キャンパス(石川県金沢市). [招待講演]
2. K. Hamaya, “Ge-based spintronics with epitaxial Heusler alloys”, The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy, 2016 年 8 月 11 日, 名古屋国際会議場(愛知県名古屋市). [招待講演]
3. 浜屋宏平, “低温形成ホイスラー合金を用いたゲルマニウムスピントロニクス”, 公益社団法人日本金属学会 2015 年秋期(第 157 回)講演大会, 2015 年 9 月 18 日, 九州大学 伊都キャンパス(福岡県福岡市).[招待講演]
4. 浜屋宏平, “メタル・ソースドレイン型スピントランジスタの創成に向けて”, 応用電子物性分科会・スピントロニクス研究会共同主催研究会、「スピントロニクスの最前線」, 2014 年 11 月 25 日, 首都大学東京 秋葉原サテライトキャンパス(東京都千代田区). [招待講演]
5. S. Yamada and K. Hamaya, “Atomically Controlled Molecular Beam Epitaxy of Germanium-ferromagnetic Alloys for Spintronic Devices”, Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG), 2014 年 11 月 5 日, Phuket (Thailand). [招待講演]

他 招待講演 8 件、一般発表 54 件

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.semi.ee.es.osaka-u.ac.jp/hamayalab/>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

浜屋 宏平 (HAMAYA, Kohei)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授  
研究者番号：90401281

(2)研究分担者

澤野 憲太郎 (SAWANO, Kentarou)

東京都市大学・工学部・教授  
研究者番号：90409376

斎藤 好昭 (SAITO, Yoshiaki)

株式会社東芝研究開発センター・研究主幹  
研究者番号：80393859